

## METHOD FOR PREPARING CATALYST

**Publication number:** JP2111440

**Publication date:** 1990-04-24

**Inventor:** TANABE MIEKO; ITO KUNIO; UCHIDA MAKOTO; YANAGIHARA NOBUYUKI

**Applicant:** MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

**Classification:**

**- international:** *B01J23/40; B01J37/16; H01M4/88; H01M4/92; B01J23/40; B01J37/00; H01M4/88; H01M4/90; (IPC1-7): B01J23/40; B01J37/16; H01M4/88*

**- European:** H01M4/92

**Application number:** JP19880263221 19881019

**Priority number(s):** JP19880263221 19881019

**Report a data error here**

### Abstract of JP2111440

**PURPOSE:** To promote the alloying of  $\geq 2$  kinds of noble metals and to deposit the alloy on a carrier by using aq. hydrogen peroxide as a reaction accelerator in the title method for preparing a catalyst wherein alcohol is used as a reducing agent, and noble metal ions are mainly deposited as noble metal particles on the carbon powder as a carrier. **CONSTITUTION:** In the method for preparing a catalyst used mainly for the carbon electrode of a fuel cell,  $\text{H}_2\text{PtCl}_6$  and  $\text{RuCl}_3$ , for example, are dissolved in an aq. soln. of the methanol, etc., as a reducing agent to incorporate the noble metal ions of Pt and Ru, aq. hydrogen peroxide is further added, the carbon powder such as carbon black is then added, and the particles of the alloyed Pt and Ru are deposited on the surface of the carbon powder as a carrier. By this method, the oxidation potential of methanol is increased, and the characteristic of the fuel electrode as a methanol fuel cell catalyst is improved.

---

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

## ⑫ 公開特許公報(A) 平2-111440

⑬ Int. Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 平成2年(1990)4月24日

B 01 J 23/40

Z

8017-4G

37/16

6939-4G

H 01 M 4/88

K

7623-5H

審査請求 未請求 請求項の数 3 (全4頁)

⑮ 発明の名称 触媒調整法

⑯ 特 願 昭63-263221

⑰ 出 願 昭63(1988)10月19日

⑱ 発 明 者	田 辺 美 恵 子	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑱ 発 明 者	伊 藤 邦 夫	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑱ 発 明 者	内 田 誠	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑱ 発 明 者	柳 原 伸 行	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑲ 出 願 人	松下電器産業株式会社	大阪府門真市大字門真1006番地	
⑲ 代 理 人	弁理士 栗野 重孝	外 1 名	

## 明 細 書

## 1、発明の名称

触媒調整法

## 2、特許請求の範囲

(1) アルコールを還元剤に用い、主として貴金属イオンを貴金属粒子として担体である炭素粉体上に担持させる方法において、反応促進剤として過酸化水素水を用いることを特徴とする触媒調整法。

(2) 特許請求の範囲第1項において、過酸化水素水の濃度が5～10%の範囲内にある触媒調整法。

(3) 特許請求の範囲第1項において、貴金属イオンとして、Ptを含む2種以上の貴金属を用いる触媒調整法。

## 3、発明の詳細な説明

産業上の利用分野

本発明は、主に燃料電池用炭素電極用の触媒調整法に関するものである。

従来の技術

従来この種の炭素電極用触媒調整法は次のような方法で行なわれていた。すなわち、貴金属イオンとして、 $H_2PtCl_6$ 水溶液、 $RuCl_3$ 水溶液に、水および還元剤としてメタノール、担体である炭素粉体としてカーボンブラックを加え、70℃で4～6時間、冷却管下で反応させ、カーボンブラック上にPt、Ru粒子を合金化して担持させ、ろ過、乾燥し、そして、この触媒粉末をコーヒーミルで粉砕して得られていた。このようにして得られた触媒粉末をCOパルス法による活性表面積測定装置(TCDを備えた常圧流通装置)で担持されている貴金属粒子の粒子径(RuもPtとして計算)を求めた。担持率はカーボンブラックに対して、Pt、Ruをあわせると、15～20wt%であり、粒子径は20～30Åと極めて小さい微粒子となっていることがわかった。そこで、この触媒粉末を電極に成型、試作し、メタノール極の分極特性を評価してみた。その結果を第2図に示す。第2図に示すように、メタノール酸化電位は60mA $cm^{-2}$ で0.55V(VS.NHE)でPtのみのも

のと比較すると、Ru の効果がほとんど得られていない。そこで、その触媒粉末のPt、Ru の担持の状態を調べるために、X線回折を行った。その結果を第3図に示す。第3図に示すように、Pt のピークがシャープに現れているのみでRu のそれは観測されていない。このことは明らかにPt とRu が合金化していないことを示しており、またこの結果から、先に述べたように、メタノール酸化電位の向上が見られないということがいえる。メタノール酸化電位を向上させるためには、Pt とRu が合金化しなければいけない。Pt とRu が単独で担持されている場合はメタノールの酸化反応はPt のみの活性部分で行なわれ、Ru の添加の意味がない。

発明が解決しようとする課題

このように従来の貴金属触媒の調整法では、アルコール燃料電池の炭素電極用に望まれる燃料極特性を有する触媒粉末が得られないという課題を有していた。

本発明は、このような従来の課題を解決するも

もの38ml、カーボンブラック2gを入れてよく攪拌し、そこに70℃で4～6時間、冷却管下で反応させる。反応終了後、ろ過、水洗して、60℃で乾燥し、触媒粉末を得た。

得られた触媒粉末を公知の電極製造法により、カーボンブラック（触媒未担持）と本実施例で作った触媒付カーボンブラックとの混合物をカーボンペーパーに塗着し、加圧一体化して電極とした。この電極を用いて、電極電位を測定した。

〔比較例〕

比較として、実施例において用いた過酸化水素水を加えずに同様にして調整し、触媒粉末を得た。得られた2種の触媒粉末のPt-Ruの活性表面積から粒子径を求めた結果を第1表に示す。

第 1 表

触媒粉末No	粒子径 1 Å	担持率 1 %
1	61.4	18.2
2	24.7	14.7

ので、Pt とRu がうまく固溶合金化されて、担持している炭素電極用触媒体を調整することを目的とするものである。

課題を解決するための手段

この課題を解決するために、本発明は、還元剤であるアルコール水溶液に、貴金属イオン、さらに、反応促進剤として過酸化水素水を加えたのち、炭素粉体例えばカーボンブラックを加え、担体である炭素粉体の表面に合金化した貴金属粒子を担持させたものである。

作用

これにより、Pt とRu は固溶合金化し、カーボン担体上に担持され、炭素電極用触媒体としてそのメタノール極特性を向上させることとなる。

実施例

還元剤として、メタノール200ml、水180mlを混合したアルコール水溶液中に、 $H_2PtCl_6$ を3.94g（Ptがカーボンブラックに対し、15wt%）、および $RuCl_3$ を3.86g（Pt:Ru=1:1原子比）を入れ、 $H_2O_2$ 水31%濃度の

第1表において、1は実施例、2は比較例の触媒粉末である。

第1表より、比較例に比べて実施例は担持率は向上しているが、粒子径は約2倍の大きさになっている。比較例では、Pt とRu がうまく1:1に合金化していなかったので、Pt とRu は単独にカーボン担体上に担持されていると考えられるため24.7Åときわめて小さな粒子という結果が得られたのであろう。

また、これらの触媒粉末を用いて、メタノール燃料電池の燃料極として性能評価した結果を第1図に示す。

第1図に示すように、実施例のものは比較例よりも特性はきわめて向上しており、60mA $cm^{-2}$ で、約0.1V（V S . N H E）も良くなっている。このことから、 $H_2O_2$ 水を加えることにより、Pt とRu がうまく合金化し、そのためにメタノール酸化電位が向上したのだろうと考えられる。

発明の効果

以上のように本発明によれば、過酸化水素水を

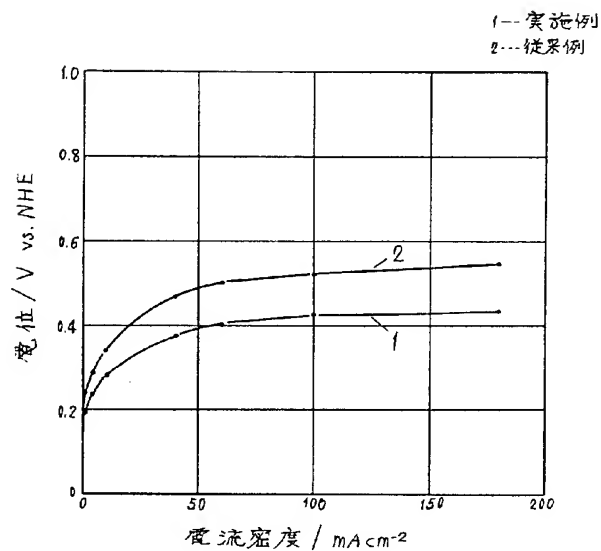
新たに加えることで、反応が促進され、2種類の貴金属の合金化が進み、2種のものが単独に担持されるのではなく、何らかのかかわりをもって、担体上に担持させることができ、メタノール燃料電池用触媒として、燃料極の特性を向上させるという効果が得られる。

#### 4. 図面の簡単な説明

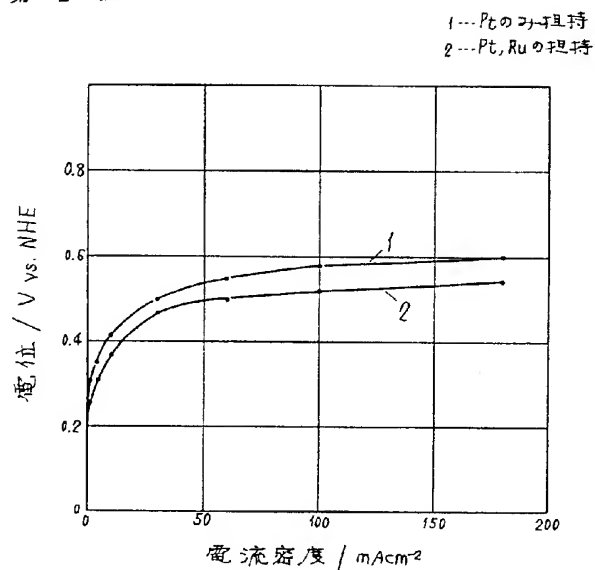
第1図は本発明触媒体と従来の触媒体を用いて作製したメタノール燃料電池の燃料極の電位と電流密度の関係を示す図、第2図は従来の触媒体の中でPt, Ruを混合して調整したものとPtのみのもを用いて作製したメタノール燃料電池の燃料極の電位と電流密度の関係を示す図、第3図は従来の触媒体のX線回折の結果を示す図である。

代理人の氏名 井理士 栗野 重孝 ほか1名

第 1 図



第 2 図



第 3 図

